

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平8-164303

(43) 公開日 平成8年(1996)6月25日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>

B 0 1 D 17/00

識別記号

庁内整理番号

F I

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数5 F D (全 6 頁)

(21) 出願番号 特願平6-331398

(22) 出願日 平成6年(1994)12月12日

(71) 出願人 591075489

三井製薬工業株式会社

東京都中央区日本橋3-12-2

(72) 発明者 池田 彰好

千葉県茂原市町保138-1 八幡前社宅  
122号

(72) 発明者 佐藤 春夫

千葉県茂原市東郷2142 官の台寮

(72) 発明者 小野 行睦

千葉県茂原市町保90-1 東の台社宅  
444号

(74) 代理人 弁理士 辻 良子

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 残留低級アルコールの除去方法

(57) 【要約】

【構成】 製品中に残留する低級アルコール、特にメタノールおよび/またはエタノールを除去するに当たり、残留低級アルコールを含む製品を加湿空気雰囲気中で通風処理して製品中の残留低級アルコールを除去する方法。

【効果】 本発明の方法による場合は、温和な温度条件下で、製品の品質低下、変質、分解などを生ずることなく、製品中に含まれる残留低級アルコールを、良好な作業性で速やかに効率よく短時間で除去することができ、本発明の方法は、特に医薬品、化学薬品、食品などの製品中に含まれる微量な残留低級アルコールの効率的な除去に適している。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 製品中に残留する低級アルコールを除去するに当たり、残留低級アルコールを含む製品を加湿空気雰囲気中で通風処理することを特徴とする製品中の残留低級アルコールの除去方法。

【請求項2】 低級アルコールが炭素数1～4のアルコールのうちの1種または2種以上である請求項1の残留低級アルコールの除去方法。

【請求項3】 低級アルコールがメタノールおよび／またはエタノールである請求項2の残留低級アルコールの除去方法。

【請求項4】 残留低級アルコールを含む製品が、顆粒状、粉末状、薄片状または短繊維状の製品である請求項1～3のいずれか1項の残留低級アルコールの除去方法。

【請求項5】 加湿空気雰囲気中の絶対湿度が10～60 g/kgである請求項1～4のいずれか1項の残留低級アルコールの除去方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、製品中に含まれる残留低級アルコールの除去方法に関する。より詳細には、本発明は、製品中に含まれる残留低級アルコールを、製品の品質低下、変質、分解などを招くことなく、速やかに効率よく除去する方法であって、本発明の方法による場合は、医薬品をはじめとして種々の製品中に含まれる残留低級アルコール、特に微量の残留低級アルコールを、極めて速やかに且つ効果的に除去することができる。

## 【0002】

【従来の技術】メタノールやエタノールなどの低級アルコールは、医薬、化学薬品をはじめとして各種の製品の製造工程や処理工程などにおいて溶媒、反応原料などとして広く使用されている。製品の種類によっては低級アルコールが多少残留していてもさして問題にならないものもあるが、例えば、医薬、高純度化学薬品、食品、医療器具などでは、微量であっても低級アルコールの残留が問題とされるものが多く、そのような製品では、残留低級アルコールの除去が製品の重要な仕上げ工程の一つとなっている。

【0003】製品中に残留する低級アルコールの除去に当たっては、従来、①製品を通風処理器中に入れてそこに乾燥空気を通して低級アルコールの残留量が所定値以下になるまで処理を行う方法、②残留低級アルコールを含む製品を低級アルコールの沸点以上に加熱する方法、③残留低級アルコールを含む製品を減圧下に吸引処理する方法などが採用されている。

【0004】しかしながら、乾燥空気を用いる上記①の従来法による場合は、製品中の残留低級アルコールを速やかに除去することができず、残留低級アルコールを除去するのに長い時間を要するため、生産性が極めて低

く、特に製品中における低級アルコール量をppmオーダーにまで減少させるのは容易ではない。そこで、残留低級アルコールの除去効率を上げる（除去速度を速める）ために、この①の方法を実施するに当たり、処理温度を上げることが試みられているが、製品が過度に加熱されて、製品の品質低下、変質、熱分解などを生ずるといった問題があり、特に熱に対して不安定なものの多い医薬品などでは、処理温度を上げることは実際には不可能である。また、この①の方法において、低級アルコールの除去処理時の通風量を多くすると、処理時間は短縮されるが、通風量を多くするために大型の通風装置が必要になり設備費が高くなるなどの欠点がある。しかも、製品が粉末や顆粒などのような微細で軽量なものの場合は、強い風によって製品の飛散、飛散などに伴う歩留りの低減や消失などの問題が生じ易い。

【0005】また、上記②の従来法による場合は、残留低級アルコールの沸点以上に加熱して処理を行う必要があり、低級アルコールのうちで最も沸点の低いメタノールでさえもその沸点が64.65℃である点から、医薬品や化学薬品などでは60℃以上に加熱すると品質低下や変質を生ずるものが多く、有効な方法ではない。しかも、この②の方法による場合も、製品中における残留低級アルコール量をppmのオーダーにまで減少させるのは実際上困難である。更に、上記③の方法による場合も、製品中の残留低級アルコール量をppmのオーダーにまで低減することが極めてむづかしい。

## 【0006】

【発明が解決しようとする課題】本発明が解決しようとする課題は、製品中に含まれる残留低級アルコール、特に製品中に残留する微量の低級アルコールを、製品の品質低下、変質、分解、飛散、消失などを招くことなく、温和な条件下で、短時間で速やかに効率よく、良好な作業性で除去することのできる方法を提供することである。

## 【0007】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、上記の課題を解決するために残留低級アルコールの除去方法について色々検討を行ってきた。そしてその結果、通風処理によって製品中の残留低級アルコールを除去する場合に、通風処理に用いる空気（雰囲気）中に含まれる水分が製品からの残留低級アルコールの除去に大きな影響を有しており、残留低級アルコールを含む製品を湿分を有する加湿空気（加湿雰囲気）中で通風処理すると製品中の残留低級アルコールが速やかに除去されて所定以下の量まで短時間で低減できること、しかもこの方法による場合は、製品中の残留低級アルコールをppmのオーダーの極めて微量な量にまで円滑に低減できることを見出して本発明を完成するに至った。

【0008】したがって、本発明は、製品中に残留する低級アルコールを除去するに当たり、残留低級アルコー

ルを含む製品を加湿空気雰囲気中で通風処理することを特徴とする製品中の残留低級アルコールの除去方法である。

【0009】ここで、本発明でいう「製品」とは、その製品の製造後またはその製品の所定の処理工程や加工工程などの後に、その製品中に低級アルコールが残留していて、その残留低級アルコールの除去が必要である製品、または残留低級アルコールの除去が望ましい製品を意味し、その種類などは特に制限されない。更に、本発明の方法は、製品中に含まれる残留低級アルコール量が

多くても、少なくても、または微量であっても、製品中に含まれる残留低級アルコールを温和な条件下で速やかに除去することができるので、本発明で対象とする「製品」では、通風処理前の製品中における残留低級アルコールの量は特に制限されないが、本発明の方法は、従来法では困難であった製品中に含まれる微量の残留低級アルコールの除去に特に有効である。

【0010】本発明の方法によって残留低級アルコールを除去できる製品の例としては、低級アルコールの残留している医薬、化学薬品、食品、プラスチック、医療器具、電気・電子部品などを挙げることができるが、勿論、これらに限定されるものではない。特に、本発明の方法による場合は、過度の加熱などを行うことなく温和な条件下で、製品中に含まれる残留低級アルコールを速やかに且つ高度に除去して残留低級アルコール量を極めて微量にまで短時間で低減することができるので、長時間の加熱や高温加熱などによって品質低下、変質、分解などが生じ易く、しかも残留低級アルコール量を極めて微量にまで低減することが求められている、医薬品、高純度化学薬品、食品などの製品に対して有効に行うことができる。その場合に、医薬品やその他の製品が、表面積の大きな顆粒状、粉末状、薄片状、短繊維状などの形態をなしていると、残留低級アルコールの除去速度や除去率が一層向上するので、本発明の方法は、顆粒状、粉末状、薄片状または短繊維状をなす製品からの残留低級アルコールの除去に特に適している。

【0011】また、本発明でいう「低級アルコール」とは、典型的には炭素数1～4のアルコール、すなわちメタノール、エタノール、プロパノールおよびブタノールをいい、したがって本発明で対象としている上記した「製品」は、これらの低級アルコールの1種または2種以上が残留している製品を意味する。そのうちでも、本発明の方法は、メタノールおよびエタノール的一方または両方が残留している製品からのメタノールおよび/またはエタノールの除去に有効である。

【0012】そして、本発明の方法における「加湿空気雰囲気中での通風処理」は、典型的には、残留低級アルコールを含む製品を、水蒸気を含む空気の流れの雰囲気中に置いて製品中に含まれる残留低級アルコールを製品から除去し、低級アルコールを含む汚れた空気を該雰

気の外に排出させる処理をいう。その場合に、水蒸気を含む空気を雰囲気中に連続的または間欠的に供給する一方で低級アルコールを含む汚れた空気を連続的または間欠的に雰囲気外に排出する方法を採用しても、或いは雰囲気中に乾燥空気と水蒸気のそれぞれを個別に連続的または間欠的に供給して雰囲気内を加湿空気雰囲気とする一方で低級アルコールを含む汚れた空気を連続的または間欠的に雰囲気外に排出する方法を採用してもよい。特に、雰囲気への水蒸気を含む空気（加湿空気）の供給および雰囲気からの低級アルコールを含む汚れた空気の排出を連続的に行って雰囲気内が常に通風状態にあるようにすると、製品からの残留低級アルコールの除去をより速やかに行うことができるので望ましい。通風処理装置の種類や規模、通風処理の具体的なやり方などは、処理を施す製品の種類、サイズ、形態などに応じて適宜選択するとよい。

【0013】本発明で採用し得る通風処理方法の具体例としては、

(i) 残留低級アルコールを含有する製品を、バッチ式の通風処理容器、通風処理室、通風処理槽などに置いたり充填して、そこに加湿空気を連続的にまたは間欠的に供給して製品中の低級アルコールの残留量が所定の値以下になるまで低級アルコールの除去処理を行い、その一方で低級アルコールなどを含む汚れた空気を連続的にまたは間欠的に系外に排出して、低級アルコールの残留量が所定値以下のなった製品を系外に取り出す方法；

(ii) 残留低級アルコールを含有する製品を、バッチ式の流動床式の通風処理装置内に入れ、そこに加湿空気を連続的に供給し、その加湿空気によって系内で製品を流動床状態に保ちつつ製品中の低級アルコールの残留量が所定の値以下になるまで製品から残留低級アルコールを除去し、低級アルコールなどを含む汚れた空気を連続的に系外に排出して、低級アルコールの残留量が所定値以下になった製品を系外に取り出す方法；

(iii) 残留低級アルコールを含有する製品を、連続式の通風処理室にコンベヤーやその他の搬送装置で連続的に供給し、その通風処理室に加湿空気を連続的に供給して製品中に含まれる低級アルコールを除去して所定の値以下にし、残留低級アルコールの含有量が所定値以下になった製品を連続的に通風処理室の外に取り出すと共に、低級アルコールなどを含む汚れた空気を通風処理室外に排出して、製品から残留低級アルコールを除去する方法；などを挙げることができる。しかし、勿論上記の方法に限定されない。

【0014】そして、上記した(i)～(iii)の方法による場合は、系外に排出された低級アルコールなどを含む汚れた空気は、排出空気中に含まれる低級アルコールなどを除去した後に大気中などに放出するか、または低級アルコールなどを除去した後にその湿分含量を調整して、通風処理雰囲気中に再循環してもよい。

【0015】製品から残留低級アルコールを除去するに当たって、製品の処理を行う加湿空気雰囲気中の湿度（水蒸気量）は、製品の種類、形状、形態、サイズ、製品に含まれる残留低級アルコールの種類や量、製品における低級アルコールの残留許容量、低級アルコールの除去処理装置の種類や規模、処理温度、通風処理装置への通風量などに応じて、各々の状況により適した湿度範囲を決めることができるが、一般に、加湿空気雰囲気中の湿度を絶対湿度で10 g/kg（乾燥空気）以上、好ましくは20 g/kg（乾燥空気）以上にすると、残留低級アルコールの除去を円滑に行うことができる。

【0016】例えば、20000 ppm程度のメタノールまたはエタノールを残留・含有している顆粒状、粉末状、薄片状などの医薬品や化学薬品などを、60℃以下の加湿空気雰囲気中で本発明の方法で処理してそのメタノールまたはエタノールの残留量を1000 ppm以下にする場合は、加湿空気雰囲気中の湿度を絶対湿度で約10 g/kg（乾燥空気）以上、好ましくは20 g/kg（乾燥空気）以上にすると、残留メタノールまたはエタノールの量を短い通風処理時間で1000 ppm以下にまで減らすことができる。なお、ここでいう「絶対湿度」とは、製品の処理が行われる加湿空気雰囲気中における空気（乾燥空気）1 kg中に含まれる水蒸気の重量（g）をいい、下記の数式により求められる。

【0017】

$$\text{【数1】 } H(\text{g/kg}) = \{ (W_m/A_m) \times p \times 10^3 \} / (\pi - p) = \{ (18.02/28.97) \times p \times 10^3 \} / (\pi - p) = 622p / (\pi - p)$$

（上記式中、H＝加湿空気雰囲気中の絶対湿度、W<sub>m</sub>＝水蒸気の分子量、A<sub>m</sub>＝空気の分子量、p＝水蒸気分圧、π＝全圧）

【0018】一般に、通風処理を行う加湿空気雰囲気における湿度（絶対湿度）が高くなるほど、製品中の残留低級アルコールをより速やかに除去することが可能になるので、加湿空気雰囲気における湿度（絶対湿度）の上限値は特に限定されない。しかしながら、加湿空気雰囲気中の湿度（絶対湿度）が高くなり過ぎると、製品中における残留低級アルコールの量が少なくなるものの、製品の種類、形態、サイズなどによっては、製品中の水分含量が高くなり過ぎて、べとつき、形崩れ、潮解、変質などを生ずることがあるので、それぞれの製品に適した加湿空気雰囲気中の湿度を決めるのがよい。例えば、上記した顆粒状、粉末状、薄片状などの医薬品や化学薬品などの場合は、元の形態を良好に保ちながら残留低級アルコール、特にメタノールまたはエタノールの除去を行うためには、加湿空気雰囲気中の絶対湿度を60 g/kg以下にしておくのが望ましい。

【0019】また、上記した通風処理時の加湿空気雰囲気中の湿度は、処理を施す製品の種類、耐熱温度、熱効率などを考慮して適当な湿度を選択することが必要であ

る。例えば、高温では変質や分解し易い製品の場合はあまり高くない温度で通風処理を行う必要があり、一方耐熱温度の高い製品ではある程度高い温度で通風処理を行ってもよい。

【0020】更に、加湿空気雰囲気中における通風速度（通風量）も、製品の種類、形態、サイズ、製品に含まれる残留低級アルコールの量、残留低級アルコールの除去効率などを考慮してそれぞれの製品に適した通風速度を選択するのがよい。一般に、通風速度が大きいほど製品からの残留低級アルコールの除去速度が大きくなって、残留低級アルコールの除去を短時間に行うことができるが、通風速度があまり大きすぎてもその割には残留低級アルコールの除去効率が向上しない。しかも、通風処理される製品が顆粒、粉末、薄片、短繊維などのような微細な形態のものの場合、通風速度が大きすぎると飛散、飛散による消失などを生ずる恐れがあるので注意が必要である。また、通風速度があまりに大きいと、通風装置として規模の大きなものを使用することが必要になる。一般に、加湿空気雰囲気への加湿空気の供給量を約3390～3570 m<sup>3</sup>（加湿空気）/時間程度とし、それと同様の速度で低級アルコールを含む汚れた空気を加湿空気雰囲気から排出するようにするのがよい。

【0021】上記した加湿空気雰囲気中での通風処理によって得られた残留低級アルコールが除去または低減された製品は、製品の種類などに応じて、そのまま使用したり、流通、販売することができ、また場合によっては適当な乾燥処理を行って加湿空気雰囲気中での通風処理によって吸湿した水分を除いてもよい。

【0022】

【発明の効果】本発明の方法による場合は、製品に含まれる残留低級アルコールを、良好な作業性で、速やかに且つ効率よく短時間で除去することができる。そして、本発明の方法による場合は、製品を過度に加熱したりすることなく温かな温度条件で、且つ温かな通風条件で、製品からの残留低級アルコールの除去を行うことができるので、製品の品質低下、変質、分解、飛散、飛散による消失などを防止することができる。特に、本発明の方法は製品に含まれる微量な残留低級アルコールの効率的な除去に適しており、本発明の方法によって医薬品、化学薬品、食品などの製品に含まれる微量な残留低級アルコールの除去を行った場合には、極めて効率よく、短時間で該微量の残留低級アルコールの除去を行うことができる。

【0023】

【実施例】以下に本発明を実施例により具体的に説明するが、本発明はそれにより限定されない。

【0024】《実施例 1》

（1） 医療用薬剤（メシル酸ベタヒスチン；三和ケミカル株式会社製）18, 000 gおよびコーティング基

材(「オイドラギットL-100」;ロームファーマ社製)22,500gをメタノール147,600gに溶解して溶液を製造し、常法にしたがってこの溶液188,100gを粒状核物質(白糖)45,000gに噴霧・塗布し、次いで50℃に加熱してメタノールを蒸発させて、顆粒製剤(平均粒径約600 $\mu$ m)85,500gを製造した。この顆粒製剤に含まれる残留メタノール量を下記のようにして測定したところ18,171ppmであった。

【0025】[顆粒製剤に含まれる残留メタノール量の測定法]

試料: 顆粒製剤600mgを量る。別にプロパノール100mgを量り、N,N-ジメチルホルムアミドにて50mlとする。この液5mlを採り、N,N-ジメチルホルムアミドにて100ml(A液)とする。この液4mlを採り、顆粒製剤600mgを入れN,N-ジメチルホルムアミドにて50mlとする。

標準液: メタノール500mlおよびジクロロメタン500mlを量り、N,N-ジメチルホルムアミドにて50mlとする。この液3mlを採り、N,N-ジメチルホルムアミドにて50mlとする。この液5mlを採り、N,N-ジメチルホルムアミドにて50mlとする。この液の2.5ml、5mlおよび10mlをそれぞれ採り、上記(A)液を各4ml入れ、N,N-ジメチルホルムアミドにて50mlとする。

メタノール量の測定: 各標準液5 $\mu$ lをガスクロマトグラフィ(GC)にて分析し、検量線を作成する。試料をGCにて分析し、検量線に従ってメタノール量を測定する。

GC条件:

Initial temperature	110℃
Initial time	8分
Program Rate	20分
Final temperature	200℃
Final time	10分
Injection	160℃
TCD oven temperature	200℃

【0026】(2) 上記(1)で得られた顆粒製剤14,820gをステンレス製の皿の上に15mmの厚さに拡げ、それを上部に加湿空気の導入口を有し、下部にメタノールで汚れた空気の排出口を有する通風処理室(縦×横×高さ=約200cm×100cm×237cm)の中程に設けた棚の上に載せた。

(3) 通風処理室の上部の導入口から、温度50℃および絶対湿度14g/kg(乾燥空気)の加湿空気を3480m<sup>3</sup>/時間の供給量で通風処理室に連続的に供給すると共に、同じ割合でメタノールで汚れた空気を通風処理の下部の排出口から連続的に排出させて顆粒製剤に含まれる残留メタノールの除去を行った。通風処理を開始して65時間後、89時間後および113時間後に顆

粒製剤の一部(9g)を通風処理室から取り出して、顆粒製剤に含まれる残留メタノール量を上記した方法で測定したところ、下記の表1に示すとおりであった。

【0027】《実施例 2》

(1) 顆粒製剤を製造する際のメタノールの加熱蒸発時間を実施例1の(1)におけるよりも僅かに短くした以外は実施例1の(1)と同様に行って、顆粒製剤(平均粒径約600 $\mu$ m)14,820gを得た。この顆粒製剤に含まれる残留メタノール量を上記した方法で測定したところ、19756ppmであった。

(2) 上記(1)で得られた顆粒製剤を、実施例1の(2)におけるのと同じようにして通風処理室に入れた後、通風処理室の上部の導入口から、温度50℃および絶対湿度22g/kg(乾燥空気)の加湿空気を3480m<sup>3</sup>/時間の供給割合で通風処理室に連続的に供給すると共に、同じ割合でメタノールで汚れた空気を通風処理の下部の排出口から連続的に排出させた。通風処理を開始して24時間後、48時間後および67時間後に顆粒製剤の一部(9g)を通風処理室から取り出して、顆粒製剤に含まれる残留メタノール量を上記した方法で測定したところ、下記の表1に示すとおりであった。

【0028】《実施例 3》

(1) 実施例1の(1)におけるのとはほぼ同様に行って、残留メタノール量が18101ppmの顆粒製剤(平均粒径約600 $\mu$ m)14,820gを得た。

(2) 上記(1)で得られた顆粒製剤14,820gを、実施例1の(2)におけるのと同じようにして通風処理室に入れた後、通風処理室の上部の導入口から、温度が50℃で、絶対湿度33g/kg(乾燥空気)の加湿空気を3480m<sup>3</sup>/時間の供給割合で通風処理室に連続的に供給すると共に、同じ割合でメタノールで汚れた空気を通風処理の下部の排出口から連続的に排出させた。通風処理を開始して19時間後および43時間後に顆粒製剤の一部(9g)を通風処理室から取り出して、顆粒製剤に含まれる残留メタノール量を上記した方法で測定したところ、下記の表1に示すとおりであった。

【0029】《比較例 1》

(1) 実施例1の(1)におけるのとはほぼ同様に行って、残留メタノール量が19206ppmの顆粒製剤(平均粒径約600 $\mu$ m)14,820gを得た。

(2) 上記(1)で得られた顆粒製剤14,820gを、実施例1の(2)におけるのと同じようにして通風処理室に入れた後、通風処理室の上部の導入口から、温度が50℃の加湿しない空気[絶対湿度<4g/kg(乾燥空気)]を3480m<sup>3</sup>/時間の供給割合で通風処理室に連続的に供給すると共に、同じ割合でメタノールで汚れた空気を通風処理の下部の排出口から連続的に排出させた。通風処理を開始して157時間後および190時間後に顆粒製剤の一部(9g)を通風処理室から取り出して、顆粒製剤に含まれる残留メタノール量を

上記した方法で測定したところ、下記の表1に示すとおりであった。  
\*【0030】  
\*【表1】

	比較例1	実施例1	実施例2	実施例3
《顆粒製剤の物性》				
平均粒径( $\mu\text{m}$ )	600	600	600	600
残留メタノール量(ppm)	19206	18171	19576	18101
《通風処理》				
供給空気:				
供給量( $\text{m}^3/\text{時間}$ )	3480	3480	3480	3480
絶対湿度( $\text{g}/\text{kg}$ )	<4	14	22	33
温度( $^{\circ}\text{C}$ )	50	50	50	50
排出空気:				
排出量( $\text{m}^3/\text{時間}$ )	3480	3480	3480	3480
温度( $^{\circ}\text{C}$ )	50	50	50	50
残留メタノール量(ppm):				
通風処理 0時間(直前)	19206	18171	19576	18101
19時間後	— <sup>1)</sup>	—	—	876
24時間後	—	—	1812	—
43時間後	—	—	—	200
48時間後	—	—	773	—
65時間後	—	1327	—	—
67時間後	—	—	415	—
89時間後	—	832	—	—
113時間後	—	508	—	—
157時間後	1165	—	—	—
190時間後	855	—	—	—

1) —: 残留メタノール量を測定せず

【0031】上記の表1の結果から、残留メタノールを含有する顆粒製剤を加湿空気雰囲気中で通風処理せず乾燥空気を用いて通風処理している比較例1の場合には、190時間もの通風処理を行った後によりやく顆粒製剤中の残留メタノール量が1000ppm以下になるのに対して、通風処理室に加湿空気を供給して加湿空気雰囲気中で顆粒製剤の通風処理を行っている実施例1～3では、比較例1の約半分またはそれより大幅に短い通風処理時間で顆粒製剤中の残留メタノール量が1000ppm以下になることがわかる。更に、上記の表1の実※

30※実施例1～実施例3の結果から、加湿空気雰囲気(供給空気)中の絶対湿度が高いほど、顆粒製剤からのメタノールの除去が速やかに行われ、より短い時間で残留メタノール量を1000ppm以下にすることができ、加湿空気雰囲気(供給空気)中の絶対湿度が22g/kgおよび33g/kgである実施例2および実施例3では、加湿空気雰囲気(供給空気)中の絶対湿度が14g/kgである実施例1のそれぞれ約1/2および約1/5の時間で残留メタノール量を1000ppm未満にできることがわかる。

フロントページの続き

(72)発明者 中村 均  
千葉県茂原市東郷2225-1 富士見第2ア  
パート28号

DERWENT-ACC-NO: 1996-349272

DERWENT-WEEK: 199635

COPYRIGHT 2006 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Removal of lower alcohol remaining in product - by  
exposing prod. to wind in humid air atmosphere

PATENT-ASSIGNEE: MITSUI SEIYAKU KOGYO KK[MITSN]

PRIORITY-DATA: 1994JP-0331398 (December 12, 1994)

PATENT-FAMILY:

PUB-NO	PUB-DATE	LANGUAGE	PAGES	
MAIN-IPC				
JP 08164303 A	June 25, 1996	N/A	006	B01D
017/00				

APPLICATION-DATA:

PUB-NO	APPL-DESCRIPTOR	APPL-NO	APPL-DATE
JP 08164303A	N/A	1994JP-0331398	December 12, 1994

INT-CL (IPC): B01D017/00

ABSTRACTED-PUB-NO: JP 08164303A

BASIC-ABSTRACT:

To remove lower alcohol remaining in a prod., the prod. is exposed to wind in a humid air atmosphere.

The removal is conducted in humid air atmosphere with absolute humidity of over 20 g/kg (dried air).

ADVANTAGE - Lower alcohol in a prod. is rapidly and effectively removed in a short time.

CHOSEN-DRAWING: Dwg.0/0

TITLE-TERMS: REMOVE LOWER ALCOHOL REMAINING PRODUCT EXPOSE PRODUCT WIND  
HUMIDITY AIR ATMOSPHERE

DERWENT-CLASS: J01

CPI-CODES: J01-A01;

SECONDARY-ACC-NO:

CPI Secondary Accession Numbers: C1996-110157

**Disclaimer:**

This English translation is produced by machine translation and may contain errors. The JPO, the NCIP, and those who drafted this document in the original language are not responsible for the result of the translation.

**Notes:**

1. Untranslatable words are replaced with asterisks (\*\*\*\*).
2. Texts in the figures are not translated and shown as it is.

Translated: 22:25:51 JST 05/05/2006

Dictionary: Last updated 04/27/2006 / Priority: 1. JIS (Japan Industrial Standards) term

---

**FULL CONTENTS**

---

**[Claim(s)]**

[Claim 1] The removal method of remains lower alcohol in the product characterized by carrying out ventilation processing of the product containing remains lower alcohol in humidification air atmosphere in removing the lower alcohol which remains in a product.

[Claim 2] The removal method of remains lower alcohol of Claim 1 that lower alcohol is one sort in the alcohol of a carbon number 1-4, or two sorts or more.

[Claim 3] The removal method of remains lower alcohol of Claim 2 that lower alcohol is methanol and/or ethanol.

[Claim 4] The removal method of remains lower alcohol of any 1 clause of Claim 1 -3 that the product containing remains lower alcohol is a product of the shape of granulation, powder, the shape of a thin piece, or the shape of a staple.

[Claim 5] The removal method of remains lower alcohol of any 1 clause of Claim 1 -4 that the absolute humidity of humidification air atmosphere is 10-60g/kg.

---

**[Detailed Description of the Invention]****[0001]**

[Industrial Application] This invention relates to the removal method of the remains lower alcohol contained in a product. In detail, this invention should make medical supplies the start, when you are how to remove efficiently promptly and you twist the remains lower alcohol contained in a product to the method of this invention, without causing the quality fall of a product, deterioration, decomposition, etc. The remains lower alcohol contained in various products, especially a small amount of remains lower alcohol are effectively [ very promptly and ] removable.

**[0002]**

[Description of the Prior Art] Lower alcohol, such as methanol and ethanol, is widely used as a solvent, reaction materials, etc. in various kinds of manufacturing processes, processing processes, etc. of a product including medicine and chemicals. Although there are some which do not very become a problem even if lower alcohol remains somewhat depending on the kind of product, For example, with medicine, high purity chemicals, food, and medical implements, even if it is little, there are many by which remains of lower alcohol are made a problem, and they have become one whose removal of remains lower alcohol is like [ important finisher / of a product ] with such a product.



[0003] If in charge of removal of the lower alcohol which remains in a product, How to process until it puts in \*\* products into a ventilation processing machine and the residual volume of lower alcohol reaches below a predetermined value through dry air conventionally there, \*\* The method of heating the product containing remains lower alcohol more than the boiling point of lower alcohol, the method of carrying out suction processing under decompression of the product containing \*\* remains lower alcohol, etc. are adopted.

[0004] However, when based on the conventional method of the above-mentioned \*\* using dry air, In order to take long time to be unable to remove remains lower alcohol in a product promptly, but to remove remains lower alcohol, productivity is very low and it is not easy to decrease the amount of lower alcohol especially in a product even for a ppm order. Then, in order to raise the removal efficiency of remains lower alcohol (removal speed is increased), In enforcing the method of this \*\*, to raise processing temperature is tried, but it is impossible for a product to be heated too much, and for there to be a problem of producing the quality fall of a product, deterioration, thermal cracking, etc., and to raise processing temperature by medical supplies with many unstable things especially to heat in fact. Moreover, in the method of this \*\*, if the amount of ventilation at the time of the solvent wiping removal of lower alcohol is increased, processing time will be shortened, but in order to increase the amount of ventilation, large-sized ventilation equipment is needed and there is a fault, like the cost of equipment becomes high. And in the case of detailed and lightweight things [ product ], such as powder and granulation, it is tended to produce problems accompanying scattering of a product, scattering, etc., such as reduction of the yield, and disappearance, by a strong wind.

[0005] Moreover, when based on the conventional method of the above-mentioned \*\*, it heats more than the boiling point of remains lower alcohol. It is necessary to process, and among lower alcohol, even methanol with the lowest boiling point has many in which it will produce a quality fall and deterioration from the point which is 64.65 degrees C in medical supplies or chemicals if the boiling point heats at 60 degrees C or more, and is not an effective method. And also when based on the method of this \*\*, it is difficult to decrease the amount of remains lower alcohol in a product even for the order of ppm in practice. Furthermore, also when based on the method of the above-mentioned \*\*, it is very difficult to reduce the amount of remains lower alcohol in a product even for the order of ppm.

[0006]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] The technical problem which this invention tends to solve the remains lower alcohol contained in a product, especially a small amount of lower alcohol which remains in a product, without causing the quality fall of a product, deterioration, decomposition, scattering, disappearance, etc. under mild conditions It is promptly efficient in a short time, and is offering a method removable by good workability.

[0007]

[Means for Solving the Problem] This invention persons have examined many things about the removal method of remains lower alcohol, in order to solve the above-mentioned technical problem. And when [ as a result, ] ventilation processing removes remains lower alcohol in a product It has the influence to removal of remains lower alcohol from a product with big moisture contained in the air (atmosphere) used for

ventilation processing. If ventilation processing of the product containing remains lower alcohol is carried out in the humidification air (humidification atmosphere) which has hygroscopic surface moisture, remains lower alcohol in a product is removed promptly, and it can decrease to the quantity below predetermined in a short time, And when based on this method, it finds out that remains lower alcohol in a product can be smoothly reduced even in a very very small quantity quantity of the order of ppm, and came to complete this invention.

[0008] Therefore, in removing the lower alcohol which remains in a product, this invention is the removal method of remains lower alcohol in the product characterized by carrying out ventilation processing of the product containing remains lower alcohol in humidification air atmosphere.

[0009] Here with the "product" as used in the field of this invention after manufacture of the product, or the predetermined processing process of the product, or a processing process Lower alcohol remains in the product, a product [ need / the remains lower alcohol / to be removed ] or a product with desirable removal of remains lower alcohol is meant, and the kind in particular etc. is not restricted. furthermore -- even if the method of this invention has many amounts of remains lower alcohol contained in a product -- at least -- or since the remains lower alcohol contained in a product is promptly removable under mild conditions even if it is little Although the quantity in particular of remains lower alcohol in the product before ventilation processing is not restricted by this invention with the target "product", the method of this invention is effective in especially removal of a small amount of remains lower alcohol contained in the difficult product by the conventional method.

[0010] Although the medicine with which lower alcohol remains, chemicals, food, a plastic, medical implements, electricity, electronic parts, etc. can be mentioned as an example of the product from which remains lower alcohol is removable by the method of this invention, of course, it is not limited to these. Especially when based on the method of this invention, without performing too much heating etc. under mild conditions Since the remains lower alcohol contained in a product can be removed promptly and highly and the amount of remains lower alcohol can be extremely reduced even in a very small quantity in a short time By prolonged heating, prolonged high temperature heating, etc., it is easy to produce a quality fall, deterioration, decomposition, etc., and reducing the amount of remains lower alcohol even in a very small quantity extremely moreover can carry out effectively to products, such as \*\* \*\*\*\*\*, medical supplies, high purity chemicals, and food. In that case, since the removal speed and the extraction ratio of remains lower alcohol will improve further if medical supplies and other products are making forms, such as the shape of granulation with big surface area, powder, the shape of a thin piece, and the shape of a staple The method of this invention is suitable for especially the removal of remains lower alcohol from a product that makes the shape of granulation, powder, the shape of a thin piece, or the shape of a staple.

[0011] [ lower alcohol / as used in the field of this invention / moreover, / "lower alcohol" ] Saying [ therefore ] the alcohol, i.e., methanol, the ethanol, propanol, and butanol of a carbon number 1-4 typically, the above-mentioned target "product" means the product with which one sort of these lower alcohol or two sorts or more remain by this invention. Among those, the method of this invention is [ but ] effective in removal of methanol from the product with which both methanol, and both [ one side or ] remain, and/or

ethanol.

[0012] [ and "ventilation processing in humidification air atmosphere" in the method of this invention ] The remains lower alcohol which places typically the product containing remains lower alcohol into the atmosphere of the flow of the air containing steam, and is contained in a product is removed from a product, and the processing which makes the polluted air containing lower alcohol discharge besides this atmosphere is said. In that case, while supplying into atmosphere the air containing steam continuously or intermittently, even if it adopts the method of discharging the polluted air containing lower alcohol out of atmosphere continuously or intermittently Or while supplying each of dry air and steam continuously or intermittently individually into atmosphere and making the inside of atmosphere into humidification air atmosphere, you may adopt the method of discharging the polluted air containing lower alcohol out of atmosphere continuously or intermittently. If the polluted air containing the supply and lower alcohol from atmosphere of air (humidification air) which contain steam to atmosphere especially is discharged continuously and it is made for the inside of atmosphere to be always in a ventilation state, since remains lower alcohol from a product can be removed more promptly, it is desirable. The kind and scale of a ventilation processing unit, the concrete way of ventilation processing, etc. are good to choose suitably according to the kind of product which processes, size, a form, etc.

[0013] As an example of the ventilation processing method which can be adopted by this invention (i) Put the product containing remains lower alcohol on a batch-type ventilation processing container, a ventilation processing room, a ventilation processing tub, etc., or it is filled up. The solvent wiping removal of lower alcohol is performed until it supplies humidification air there continuously or intermittently and the residual volume of lower alcohol in a product reaches below a predetermined value. The polluted air which contains lower alcohol etc. on the other hand is discharged out of a system continuously or intermittently. Method; from which the residual volume of lower alcohol takes out the product below a predetermined value with which it became out of a system (ii) [ the product containing remains lower alcohol ] Put in in the fluid bed-type ventilation processing unit of a batch type, and humidification air is supplied there continuously. Remove remains lower alcohol from a product until the residual volume of lower alcohol in a product reaches below a predetermined value, the humidification air maintaining a product at a fluid bed state within a system, and the polluted air containing lower alcohol etc. is continuously discharged out of a system. Method; which takes out the product with which the residual volume of lower alcohol became below a predetermined value out of a system (iii) The product containing remains lower alcohol is continuously supplied to the ventilation processing room of a continuation type with a conveyor or other conveying equipment, While removing the lower alcohol which supplies humidification air to the ventilation processing room continuously, and is contained in a product, carrying out to below a predetermined value and the content of remains lower alcohol taking out continuously the product which became below a predetermined value outside a ventilation processing room The polluted air containing lower alcohol etc. is discharged to ventilation processing outdoor, and although method; which removes remains lower alcohol from a product can be mentioned, it can do. However, it is not limited to the natural above-mentioned method. [0014] When [ and ] based on the above-mentioned method of (i) - (iii) After it emits it into the atmosphere etc. after the polluted air

containing the lower alcohol discharged out of the system removes the lower alcohol contained in the discharge air, or it removes lower alcohol etc., it may adjust the hygroscopic-surface-moisture content, and it may re-circulate through it in ventilation processing atmosphere.

[0015] [ in removing remains lower alcohol from a product / the humidity in humidification air atmosphere of processing a product (quantity of steam) ] The kind of product, form, a form, size, the kind and quantity of remains lower alcohol that are contained in a product, Although the humidity range which was suitable with each situation can be decided according to the kind and scale of the remains maximum permissible dose of lower alcohol in a product, and the solvent wiping removal equipment of lower alcohol, processing temperature, the amount of ventilation to a ventilation processing unit, etc. Generally, if humidity in humidification air atmosphere is made desirable more than 10g (dry air)/kg with absolute humidity more than 20g (dry air)/kg, remains lower alcohol is smoothly removable.

[0016] The shape of for example, granulation which remains and contains methanol or ethanol of about 20000 ppm, When medical supplies, chemicals, etc., such as powder and the shape of a thin piece, shall be processed by the method of this invention in humidification air atmosphere of 60 degrees C or less and the residual volume of the methanol or ethanol shall be 1000 ppm or less If humidity in humidification air atmosphere is made desirable more than about 10g (dry air)/kg with absolute humidity more than 20g (dry air)/kg, the quantity of remains methanol or ethanol can be 1000 ppm or less by short ventilation processing time. In addition, "absolute humidity" here means the weight (g) of the steam contained in 1kg of air in humidification air atmosphere where processing of a product is performed (dry air), and it asks with the following expression.

[0017]

[Equation 1]  $H(g/kg) = \{(W_m/A_m) \times 103\} / (p_i - p) = \{(18.02/28.97) \times 103\} / (p_i - p) = 622p / (p_i - p)$

(The absolute humidity of the inside of the above-mentioned formula, and H= humidification air atmosphere, the molecular weight of  $W_m$ = steam, the molecular weight of  $A_m$ = air,  $p$ = partial water vapour pressure,  $p_i$ = total pressure)

[0018] Since it becomes possible to remove remains lower alcohol in a product more promptly so that the humidity (absolute humidity) in humidification air atmosphere of performing ventilation processing generally becomes high, the upper limit in particular of the humidity (absolute humidity) in humidification air atmosphere is not limited.

However, if the humidity in humidification air atmosphere (absolute humidity) becomes high too much Although the quantity of remains lower alcohol in a product decreases, since it becomes high too much, and the moisture content in a product may be sticky and may produce form collapse, deliquescence, deterioration, etc. with the kind of product, a form, size, etc., it is good to decide the humidity of humidification air atmosphere of having been suitable for each product. For example, in the case of the above-mentioned medical supplies, such as the shape of granulation, powder, and the shape of a thin piece, chemicals, etc., in order to perform removal of remains lower alcohol especially methanol, or ethanol, keeping the original form good, it is desirable to carry out absolute humidity of humidification air atmosphere in 60g/kg or less.

[0019] Moreover, the temperature of the humidification air atmosphere at the time of the

above-mentioned ventilation processing needs to choose a suitable temperature in consideration of the kind of product which processes, a heat-resistant temperature, thermal efficiency, etc. For example, in the case of the product which deteriorates and is easy to disassemble, it is necessary to perform ventilation processing at the temperature which is not so high, and, on the other hand, it may perform ventilation processing at a to some extent high temperature with a product with a heat-resistant high temperature by high temperature. [0020] Furthermore, the ventilation speed in humidification air atmosphere (the amount of ventilation) is also good to choose the ventilation speed which was suitable for each product in consideration of the kind of product, a form, size, the quantity of the remains lower alcohol contained in a product, the removal efficiency of remains lower alcohol, etc. Generally, the removal speed of remains lower alcohol from a product becomes large, and remains lower alcohol can be removed in a short time so that ventilation speed is large, but even if ventilation speed is too large not much, comparatively [ the ], the removal efficiency of remains lower alcohol does not improve. And since in the case of the thing of the detailed form [ product / by which ventilation processing is carried out ] of granulation, powder, a thin piece, a staple, etc. there is a possibility of producing disappearance by scattering and scattering etc. when ventilation speed is too large, cautions are required. Moreover, when ventilation speed is too large, it is necessary to use the big thing of a scale as ventilation equipment. It is good to discharge the polluted air which makes the amount of supply of the humidification air to humidification air atmosphere about 3390-3570m<sup>3</sup> (humidification air) / time grade, and generally contains lower alcohol etc. at the same speed as it from humidification air atmosphere.

[0021] [ the remains lower alcohol obtained by ventilation processing in the above-mentioned humidification air atmosphere / the product removed or reduced ] You may remove the moisture which embraced the kind of product etc., could circulate, and could sell [ it could be used as it is, or ], and performed suitable dryness processing depending on the case, and absorbed moisture by ventilation processing in humidification air atmosphere.

[0022]

[Effect of the Invention] When based on the method of this invention, it is good workability and the remains lower alcohol contained in a product can be removed promptly and efficiently in a short time. And since it is mild temperature conditions, and it is mild ventilation conditions and remains lower alcohol from a product can be removed, without heating a product too much when based on the method of this invention, disappearance by the quality fall of a product, deterioration, decomposition, scattering, and scattering etc. can be prevented. Especially the method of this invention is suitable for efficient removal of the very small quantity remains lower alcohol contained in a product. When [ which came out and removed very small quantity remains lower alcohol ] contained in products, such as medical supplies, chemicals, and food, by the method of this invention, it is very efficient and this a small amount of remains lower alcohol can be removed in a short time.

[0023]

[Example] Although an example explains this invention concretely below, thereby, this invention is not limited.

[0024] <<example 1>>

(1) Dissolve 18,000g of medicines for Medical Science Division (MESHIRU acid solid HISUCHIN; made in Sanwa Chemical, Inc.), and 22,500g of coating backings ("OIDORAGITTO L-100"; made by Rome Pharma) in Methanol 147,600g. Solution was manufactured, the usual state method was followed, 188,100g of this solution was sprayed and applied at 45,000g of granular nuclear materials (white sugar), subsequently to 50 degrees C was heated, methanol was evaporated, and 85,500g of granulation tablets (average particle diameter of about 600 micrometers) were manufactured. It was 18,171 ppm when the amount of remains methanol contained in this granulation tablet was measured as follows. [0025] [The measuring method of the amount of remains methanol contained in a granulation tablet]

Sample: Measure 600mg of granulation tablets. Propanol 100mg is measured independently and it may be 50ml in N and N-JIMECHIRUHORUMU amide. 5ml of this liquid is taken and it may be 100ml (A liquid) in N and N-JIMECHIRUHORUMU amide. 4ml of this liquid is taken, 600mg of granulation tablets are put in, and it may be 50ml in N and N-JIMECHIRUHORUMU amide.

Reference solution: Methanol 500ml and methylene chloride 500ml are measured, and it may be 50ml in N and N-demethyl foramide. 3ml of this liquid is taken and it may be 50ml in N and N-JIMECHIRUHORUMU amide. 5ml of this liquid is taken and it may be 50ml in N and N-demethyl foramide. 2.5ml of this liquid, 5ml, and 10ml are taken, respectively, and it puts in each 4ml of the above-mentioned (A) liquid, and may be 50ml in N and N-JIMECHIRUHORUMU amide.

Measurement of the amount of methanol: Gas chromatography (GC) analyzes 5micro of each reference solution 1, and create a working curve. A sample is analyzed in GC and the amount of methanol is measured according to a working curve.

GC conditions: Initial temperature 110 degree-C Initial time 8-minute Program Rate 20-minute Final temperature 200-degree-C Final time 10-minute Injection 160-degree-C TCD oven temperature 200 degrees C [0026] (2) 14,820g of granulation tablets obtained above (1) It extended in thickness of 15mm on the plate made from stainless steel, and carried on the shelf formed in the middle of the ventilation processing room (vertical x horizontal x height = about 200cm x 100cm x 237cm) which has the outlet of the air which has the feed port of humidification air in the upper part, and became dirty with methanol in the lower part about it.

(3) While supplying continuously humidification air with a temperature of 50 degrees C, and an absolute humidity of 14g (dry air)/kg to a ventilation processing room by the amount of supply of 3480m<sup>3</sup>/time from the feed port of the upper part of a ventilation processing room, The remains methanol which is made to discharge continuously from the outlet of the lower part of ventilation processing of the air which became dirty with methanol from the same rate, and is contained in a granulation tablet was removed. 65 hours after starting ventilation processing, when it measured by the method which described above the amount of remains methanol which takes out a part of granulation tablet (9g) from a ventilation processing room in 89 hours and 113 hours, and is contained in a granulation tablet, it was as being shown in the following table 1.

[0027] <<example 2>>

(1) Except having shortened slightly rather than were able to set the heating evaporation time of methanol at the time of manufacturing a granulation tablet to (1) of an example 1, it carried out like (1) of an example 1, and 14,820g of granulation tablets (average

particle diameter of about 600 micrometers) were obtained. It was 19756 ppm when measured by the method which described above the amount of remains methanol contained in this granulation tablet. (2) in (2) of an example 1 for the granulation tablet obtained above (1) -- the same After carrying out and putting into a ventilation processing room, while supplying continuously humidification air with a temperature of 50 degrees C, and an absolute humidity of 22g (dry air)/kg to a ventilation processing room at a supply rate of 3480m<sup>3</sup>/time from the feed port of the upper part of a ventilation processing room It was made to discharge continuously from the outlet of the lower part of ventilation processing of the air which became dirty with methanol from the same rate. 24 hours after starting ventilation processing, when it measured by the method which described above the amount of remains methanol which takes out a part of granulation tablet (9g) from a ventilation processing room in 48 hours and 67 hours, and is contained in a granulation tablet, it was as being shown in the following table 1.

[0028] <<example 3>>

(1) It carried out almost similarly in (1) of an example 1, and 14,820g of granulation tablets (average particle diameter of about 600 micrometers) whose amount of remains methanol is 18101 ppm were obtained. (2) in (2) of an example 1 for 14,820g of granulation tablets obtained above (1) -- the same After carrying out and putting into a ventilation processing room, temperature from the feed port of the upper part of a ventilation processing room [ 50 degrees C ] While supplying continuously humidification air with an absolute humidity of 33g (dry air)/kg to a ventilation processing room at a supply rate of 3480m<sup>3</sup>/time, it was made to discharge continuously from the outlet of the lower part of ventilation processing of the air which became dirty with methanol from the same rate. When it measured by the method which described above the amount of remains methanol which takes out a part of granulation tablet (9g) from a ventilation processing room in 43 hours, and is contained in a granulation tablet 19 hours after starting ventilation processing and, it was as being shown in the following table 1.

[0029] <<comparative example 1>>

(1) It carried out almost similarly in (1) of an example 1, and 14,820g of granulation tablets (average particle diameter of about 600 micrometers) whose amount of remains methanol is 19206 ppm were obtained. (2) in (2) of an example 1 for 14,820g of granulation tablets obtained above (1) -- the same After carrying out and putting into a ventilation processing room, while supplying continuously the air [absolute humidity <4g/kg (dry air)] whose temperature is 50 degrees C and which is not humidified to a ventilation processing room at a supply rate of 3480m<sup>3</sup>/time from the feed port of the upper part of a ventilation processing room It was made to discharge continuously from the outlet of the lower part of ventilation processing of the air which became dirty with methanol from the same rate. When it measured by the method which described above the amount of remains methanol which takes out a part of granulation tablet (9g) from a ventilation processing room in 190 hours, and is contained in a granulation tablet 157 hours after starting ventilation processing and, it was as being shown in the following table 1.

[0030]

[Table 1]

Comparative example 1 Example 1 Example 2 Example 3 <<Physical properties of a

granulation tablet>>

Average particle diameter (micrometer) 600 600 600 600 The amount (ppm) of remains methanol 19206 18171 19576 18101 <<ventilation processing>>

Supply air: Amount of supply (m<sup>3</sup>-/time) 3480348034803480 Absolute humidity (g/kg) <4142233 Temperature (degree C) 50505050 Discharge air: The amount

3480348034803480 of discharge (m<sup>3</sup>-/time) Temperature (degree C) 50505050 The amount (ppm) of remains methanol : Ventilation processing 0 hour (just before)

19206181711957618101 19 hours after -1 - - 876 24 hours after - - 1812 - 43 hours after -

-- 20048 hours after -- 1327 to 67 hours after after [ 773 to 65 hours ]--- 1165 after [ of after / of after / 415 to 89 hours /- 832 to 113 hours /-] 508 to 157 hours - - - 190 hours

after 855 - - - 1-: The amount of remains methanol It does not measure. [0031] In the case

of the comparative example 1 which is carrying out ventilation processing from the result of the above-mentioned table 1 using dry air without carrying out ventilation processing

of the granulation tablet containing remains methanol in humidification air atmosphere

As opposed to the amount of remains methanol in a granulation tablet being set to 1000

ppm or less at last, after performing ventilation processing of no less than 190 hours In

the example 1-3 which supplies humidification air to a ventilation processing room, and

is performing ventilation processing of the granulation tablet in humidification air

atmosphere, it turns out that the amount of remains methanol in a granulation tablet is set

to 1000 ppm or less by the abbreviation half of a comparative example 1, or ventilation

processing time sharply shorter than it. Furthermore, from the result of the example 1 of

the above-mentioned table 1 - an example 3, removal of methanol from a granulation

tablet is promptly performed, so that the absolute humidity in humidification air

atmosphere (supply air) is high, and it is the amount of remains methanol in shorter time.

[ can make it 1000 ppm or less and / the absolute humidity in humidification air

atmosphere (supply air) / the example 2 and example 3 which are 22g / kg / /and 33g/kg ]

about [ each 1 / about / of the example 1 whose absolute humidity in humidification air

atmosphere (supply air) is 14g/kg / 2, and ] -- it turns out that the amount of remains

methanol is made to less than 1000 ppm in one fifth of time.